

09/963, 441

JUN KAMATAKU, ET. AL.

"ELECTRO CONDUCTIVE DEVICE, DRAMATIC

ELECTROFLUORESCENCE DEVICE USING THE DEVICE AND

PROCESS FOR PRODUCTION

CPE 325745 (3/2)

286040/2001

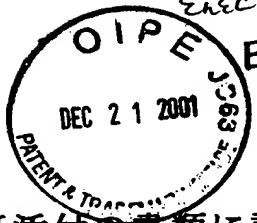
THE DEVICE AND

PROCESS FOR PRODUCTION

THE ELECTROCONDUCTIVE

DEVICE"

A.U. 2811



日本特許庁

JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されて
いる事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed
with this Office

出願年月日

Date of Application:

2001年 9月20日

出願番号

Application Number:

特願2001-286040

出願人

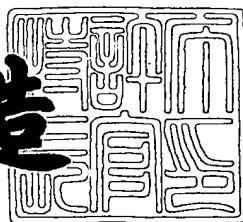
Applicant(s):

キヤノン株式会社

2001年10月19日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

及川耕造



出証番号 出証特2001-3092043

【書類名】 特許願
【整理番号】 4560001
【提出日】 平成13年 9月20日
【あて先】 特許庁長官殿
【国際特許分類】 G09F 9/30
【発明の名称】 導電素子及びこれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子、及び導電素子の製造方法
【請求項の数】 12
【発明者】
【住所又は居所】 東京都大田区下丸子3丁目30番2号 キヤノン株式会社内
【氏名】 鎌谷 淳
【発明者】
【住所又は居所】 東京都大田区下丸子3丁目30番2号 キヤノン株式会社内
【氏名】 滝口 隆雄
【発明者】
【住所又は居所】 東京都大田区下丸子3丁目30番2号 キヤノン株式会社内
【氏名】 岡田 伸二郎
【発明者】
【住所又は居所】 東京都大田区下丸子3丁目30番2号 キヤノン株式会社内
【氏名】 坪山 明
【発明者】
【住所又は居所】 東京都大田区下丸子3丁目30番2号 キヤノン株式会社内
【氏名】 森山 孝志

【発明者】

【住所又は居所】 東京都大田区下丸子3丁目30番2号 キヤノン株式会
社内

【氏名】 水谷 英正

【特許出願人】

【識別番号】 000001007

【氏名又は名称】 キヤノン株式会社

【代理人】

【識別番号】 100096828

【弁理士】

【氏名又は名称】 渡辺 敏介

【電話番号】 03-3501-2138

【選任した代理人】

【識別番号】 100059410

【弁理士】

【氏名又は名称】 豊田 善雄

【電話番号】 03-3501-2138

【先の出願に基づく優先権主張】

【出願番号】 特願2000-298025

【出願日】 平成12年 9月29日

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 004938

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9703710

【ブルーフの要否】 要

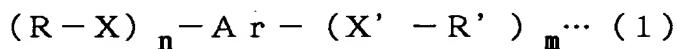
【書類名】 明細書

【発明の名称】 導電素子及びこれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子
、及び導電素子の製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項1】 2枚の対向する電極間に、発光層と、互いに構造異性体である複数の有機化合物の混合物からなる導電層とを少なくとも挟持してなる導電素子。

【請求項2】 上記有機化合物が、下記一般式(1)で示される構造を有する請求項1に記載の導電素子。



(上記式中、Arは1個の環構造或いは2個以上の環が繋がった構造を示す。

X、X'はそれぞれ独立に、単結合、-O-、-S-、-OOC-、-COO-を示す。

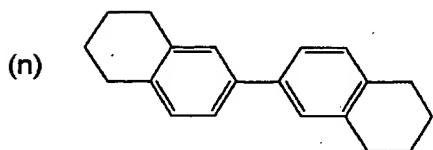
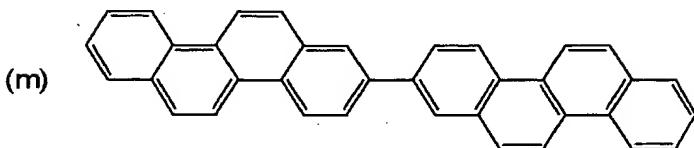
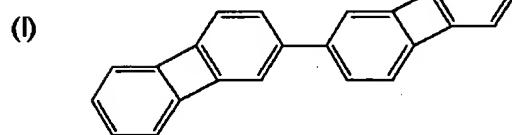
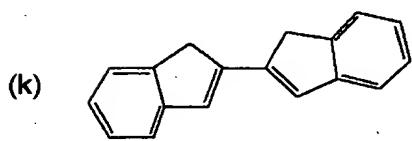
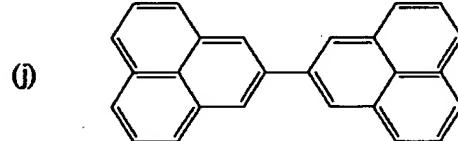
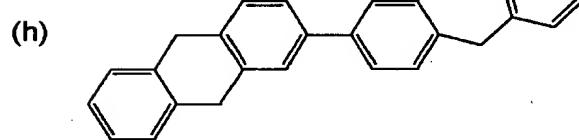
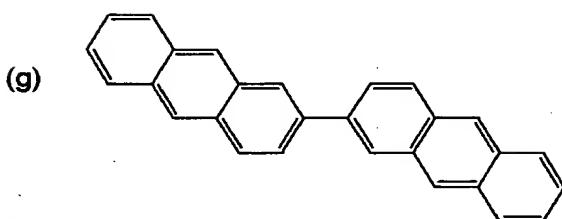
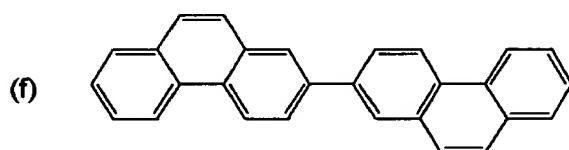
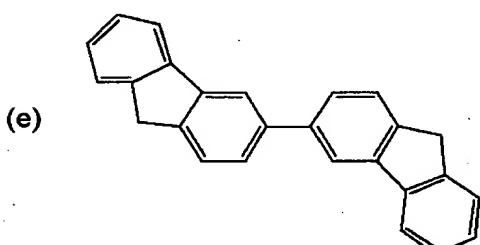
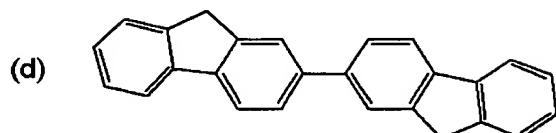
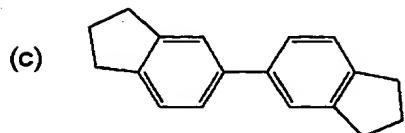
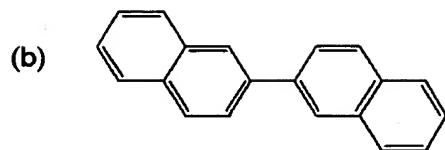
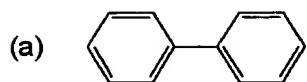
R、R'はそれぞれ独立に、-H、-F、または、炭素数1~20の直鎖状または分岐状のアルキル基を示し、該アルキル基中の1個のメチレン基は-O-、-S-、-CH=CH-、-C≡C-に置換されていても良い。但し、X、X'がいずれも単結合の場合には、R、R'が同時に-Hとなることはない。

m、nは1~8の整数である。)

【請求項3】 上記一般式(1)におけるArが2~5個の環が繋がった構造を有する請求項2に記載の導電素子。

【請求項4】 上記一般式(1)におけるArが下記一般式(a)~(m)で示されるいずれかの構造を有する請求項3に記載の導電素子。

【化1】



(上記式中、CHはNまたはNHに、CH₂はSまたはOに置換されていても良い。)

【請求項5】 上記一般式(1)において、Arが下記一般式(2)で示される構造を有する請求項2～4のいずれかに記載の導電素子。

A-B … (2)

(上記式中、A、Bはそれぞれ独立に、フェニルージイル、ピリジンージイル、ピラジンージイル、ピリミジンージイル、ピリダジンージイル、インデンージイル、インドリジンージイル、イソインドールージイル、インドールージイル、プリンージイル、ナフタレンージイル、キノリンージイル、イソキノリンージイル、キノキサリンージイル、[1, 5]ナフチリジンージイル、[1, 6]ナフチリジンージイル、[1, 7]ナフチリジンージイル、[1, 8]ナフチリジンージイル、キナゾリンージイル、シンノリンージイル、ピリド[2, 3-b]ピラジンージイル、ピラジノ[2, 3-b]ピラジンージイル、プテリジンージイル、ビフェニレンージイル、フルオレンージイル、カルバゾールージイル、チアントレンージイル、フェナレンージイル、フェナントリジンージイル、フェナントレンージイル、アントラセンージイル、クリセンージイル、アクリジンージイル、ペリミジンージイル、フェナントロリンージイル、フェナジンージイル、フェノチアジンージイル、フェノキサジンージイル、インダンージイル、クマランージイル、フタランージイル、クロマンージイル、イソクロマンージイル、チアクロマンージイル、イソチアクロマンージイル、チアキサンテンージイルのいずれかである。)

【請求項6】 上記一般式(2)におけるAがキノキサリンージイルである請求項5に記載の導電素子。

【請求項7】 上記一般式(1)において、R=R'、X=X'、m=n=1であり、ArがA-B(A=B)で示される構造を有し、点対称構造を有する請求項2～6のいずれかに記載の導電素子。

【請求項8】 上記複数の有機化合物の混合物からなる導電層が、アモルファス状態である請求項1～7のいずれかに記載の導電素子。

【請求項9】 請求項1～8のいずれかに記載の導電素子において、上記導

電層をキャリア注入層或いはキャリア輸送層として用い、さらに電極間に発光層を挟持した有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項10】 上記導電層を用いたキャリア注入層或いはキャリア輸送層が、電子注入層である請求項9に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項11】 2枚の対向する電極間に導電層を少なくとも挟持してなる導電素子を製造する導電素子の製造方法であって、

有機化合物で且つ構造異性体の混合物である前記導電層を前記電極間に配置する導電層配置工程を有する導電素子の製造方法。

【請求項12】 前記導電層配置工程は、前記導電層を真空蒸着によって配置する工程である請求項11に記載の導電素子の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、フラットパネルディスプレイ、プロジェクションディスプレイ、プリンタ等に用いられる有機エレクトロルミネッセンス素子と該素子に用いられる導電素子及びその製造方法に関する発明である。

【0002】

【従来の技術】

1987年にT. W. Tangらにより蛍光性金属キレート錯体とジアミン系分子の薄膜を積層した構造を利用して低電圧DC駆動で高輝度な発光が得られることが実証されて以来、高速応答性や高効率の発光素子として有機エレクトロルミネッセンス素子（以下、「有機EL素子」と記す）の応用研究が精力的に行われている。有機EL素子は発光層に到達した電子と正孔が再結合する際に生じる発光を利用した、キャリア注入型の自発光デバイスである。

【0003】

一般的な有機EL素子の基本的な構成図を図6に示す。図中、21は透明基板、22は陽極、23は正孔輸送層、24は発光層、25は陰極、20は有機化合物層である。

【0004】

図6の構成において、陰極25には金属電極、発光した光を取り出すため陽極22には透明電極を用いる。また、両電極間には複数の有機化合物層（本図では正孔輸送層23、発光層24）からなる有機化合物層20が挟持されている。各有機化合物層の膜厚は数百Å程度が一般的である。一般に陰極25の金属材料としては、アルミニウムやアルミニウム・リチウムの合金、マグネシウム・銀の合金などの仕事関数の小さな金属が用いられ、陽極22にはインジウム錫酸化物（ITO）などの仕事関数の大きな導電性材料が用いられる。また、有機化合物層20は図6の如く発光層24と正孔輸送層23からなる2層構造、或いは、図7に示すような、電子輸送層31、発光層24、正孔輸送層23の3層からなる構造が一般的である。

【0005】

ここで、正孔輸送層23は陽極22からの正孔を効率よく発光層24に注入させるため、また電子輸送層31は陰極25からの電子を効率よく発光層24に注入させる機能を有している。また、同時に正孔輸送層23は電子を、電子輸送層31は正孔を発光層24に閉じ込める（キャリアブロック）機能を有し、発光効率を高める効果がある。これらキャリア輸送層（正孔輸送層23、電子輸送層31）に関して、重要な特性だと考えられるのが電荷輸送能、特にキャリア移動度である。キャリア輸送層の移動度を上げることができれば、より多くのキャリアを発光層24に注入させることができ、発光効率が高まると考えられており、同時に高移動度が達成されれば、一般的に数百Åの膜厚であるキャリア輸送層の膜厚を厚く（～1μm程度）することが出来、上下電極間のショートなどを防止し、生産性も向上することが期待できる。そこで現在、有機EL素子の高効率化を達成するためのキャリア輸送層の化合物材料開発が活発に行われている。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】

電極間に有機化合物層を配置し、電界を印加することで高導電率を得るには、下記の要件が必要であることに本発明者等は注目した。

- ①電極からの電子または正孔の注入性がよいこと。
- ②キャリアの高移動度を有すること。

【0007】

ただ、これまでにも、比較的良好なホール注入、輸送材料が見出されているが、十分な特性を有する電子注入、輸送材料は未だ見出されていない。

【0008】

本発明の目的は、キャリアの注入性及び／または輸送性に優れた材料を見い出し、各種電子デバイスに応用可能な導電素子を構成し、更に、該導電素子を用いて、発光効率が高く、信頼性の高い有機EL素子を構成することにある。

【0009】

【課題を解決するための手段】

本発明の第一は、2枚の対向する電極間に、発光層と、互いに構造異性体である複数の有機化合物の混合物からなる導電層とを少なくとも挟持してなる導電素子である。

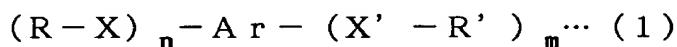
【0010】

上記導電素子においては、下記の構成を好ましい態様として含むものである。

【0011】

上記有機化合物が、下記一般式（1）で示される構造を有する構成。

【0012】



尚、上記式中、 A_r は1個の環構造或いは2個以上の環が繋がった構造を示す。 X 、 X' はそれぞれ独立に、単結合、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-OOC-$ 、 $-COO-$ を示す。

R 、 R' はそれぞれ独立に、 $-H$ 、 $-F$ 、または、炭素数1～20の直鎖状または分岐状のアルキル基を示し、該アルキル基中の1個のメチレン基は $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-CH=CH-$ 、 $-C\equiv C-$ に置換されていても良い。但し、 X 、 X' がいずれも単結合の場合には、 R 、 R' が同時に $-H$ となることはない。

n 、 m は1～8の整数である。

【0013】

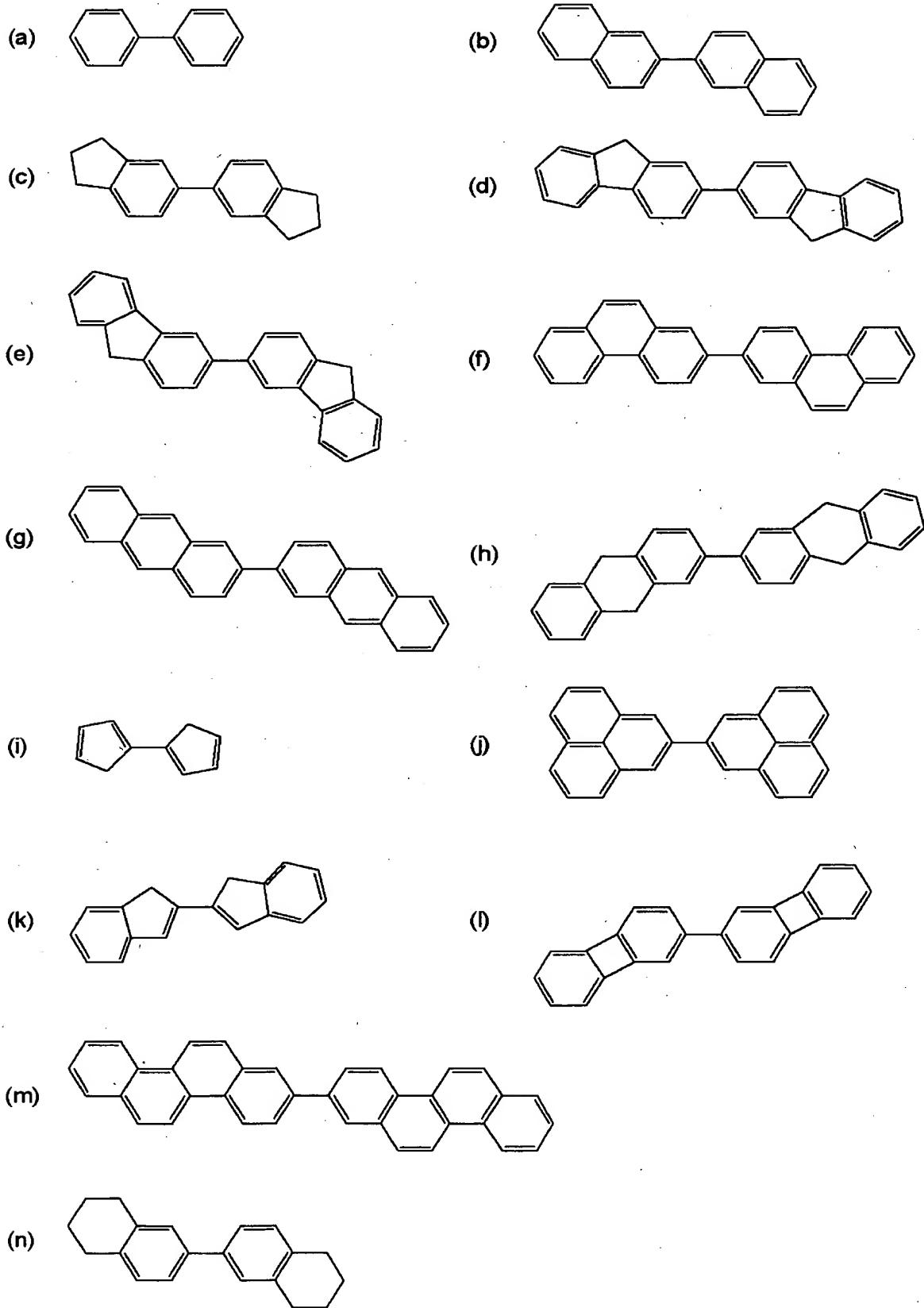
上記一般式（1）における A_r が2～5個の環が繋がった構造を有する構成。

【0014】

上記一般式(1)におけるA_rが下記一般式(a)～(m)で示されるいずれかの構造を有する構成。

【0015】

【化2】



【0016】

上記式中、CHはNまたはNHに、CH₂はSまたはOに置換されていても良い。

【0017】

上記一般式(1)において、Arが下記一般式(2)で示される構造を有する構成。

【0018】

A-B … (2)

上記式中、A、Bはそれぞれ独立に、フェニルージイル、ピリジンージイル、ピラジンージイル、ピリミジンージイル、ピリダジンージイル、インデンージイル、インドリジンージイル、イソインドールージイル、インドールージイル、プリンージイル、ナフタレンージイル、キノリンージイル、イソキノリンージイル、キノキサリンージイル、[1, 5]ナフチリジンージイル、[1, 6]ナフチリジンージイル、[1, 7]ナフチリジンージイル、[1, 8]ナフチリジンージイル、キナゾリンージイル、シンノリンージイル、ピリド[2, 3-b]ピラジンージイル、ピラジノ[2, 3-b]ピラジンージイル、プテリジンージイル、ビフェニレンージイル、フルオレンージイル、カルバゾールージイル、チアントレンージイル、フェナレンージイル、フェナントリジンージイル、フェナントレンージイル、アントラセンージイル、クリセンージイル、アクリジンージイル、ペリミジンージイル、フェナントロリンージイル、フェナジンージイル、フェノチアジンージイル、フェノキサジンージイル、インダンージイル、クマランージイル、フタランージイル、クロマンージイル、イソクロマンージイル、チアクロマンージイル、イソチアクロマンージイル、チアキサンテンージイルのいずれかである。

【0019】

上記一般式(2)におけるAがキノキサリンージイルである構成。

【0020】

上記一般式(1)において、R=R'、X=X'、m=n=1であり、ArがA-B(A=B)で示される構造を有し、点対称構造を有する構成。

【0021】

上記複数の有機化合物の混合物からなる導電層が、アモルファス状態である構成。

【0022】

本発明の第二は、上記本発明の導電素子において、上記導電層をキャリア注入層或いはキャリア輸送層として用い、さらに電極間に発光層を挟持した有機エレクトロルミネッセンス素子である。

【0023】

上記本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子においては、上記導電層を用いたキャリア注入層或いはキャリア輸送層が、電子注入層であることが好ましい。

【0024】

本発明の第三は、2枚の対向する電極間に導電層を少なくとも挟持してなる導電素子を製造する導電素子の製造方法であって、

有機化合物で且つ構造異性体の混合物である前記導電層を前記電極間に配置する導電層配置工程を有する導電素子の製造方法である。

【0025】

上記本発明の導電素子の製造方法においては、前記導電層配置工程は、前記導電層を真空蒸着によって配置する工程であることが好ましい。

【0026】

【発明の実施の形態】

本発明の導電素子の特徴は、互いに構造異性体である複数の有機化合物の混合物（以下、「構造異性体混合物」と記す）を用いて導電層を形成したことにあり、本発明の有機EL素子の特徴は、該導電層をキャリア注入層或いはキャリア輸送層として用いたことにある。

【0027】

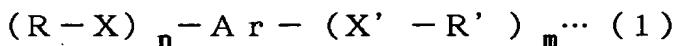
本発明にかかる構造異性体とは、環構造と示性式とが同一であるが、構造が異なる化合物をいう。本来、一つ以上の環構造を有する化合物分子はその平面構造により、单一分子の場合（構造異性体を有していない）には結晶化しやすい。そ

ここで、構造異性体混合物を用いることにより、アモルファス構造を安定に形成できることを本発明者等は見い出した。特に、複数の環構造が単結合で結ばれている低分子化合物は、アモルファス構造の安定化が顕著に見られる。本発明においては、この安定化されたアモルファス構造を有する構造異性体混合物を用いることによって、キャリア注入性及び／または輸送性の高い導電層を形成することができ、該導電層を用いて発光効率の高い有機EL素子を構成できたものである。尚、発光層については構造異性体を含まない方が良いことが特開平4-85388号により知られている。よって、本発明の有機EL素子では構造異性体混合物をキャリア注入層或いはキャリア輸送層に用いることを特徴とする。

【0028】

本発明において用いられる、構造異性体混合物を構成する有機化合物としては、下記一般式（1）で示される構造を有する化合物が好ましく挙げられる。

【0029】



尚、上記式中、Arは1個の環構造或いは2個以上の環が繋がった構造を示す。より具体的には、二つの単環同士または二つの縮合環同士が一つの単結合により繋がった構造を示す。

【0030】

X、X'はそれぞれ独立に、単結合、-O-、-S-、-OOC-、-COO-を示す。

【0031】

R、R'はそれぞれ独立に、-H、-F、または、炭素数1～20の直鎖状または分岐状のアルキル基を示し、該アルキル基中の1個のメチレン基は-O-、-S-、-CH=CH-、-C≡C-に置換されていても良い。但し、X、X'がいずれも単結合の場合には、R、R'が同時に-Hとなることはない。

【0032】

m、nは1～8の整数である。

【0033】

また、上記一般式（1）においては、Arが2～5個の環が繋がった構造を有

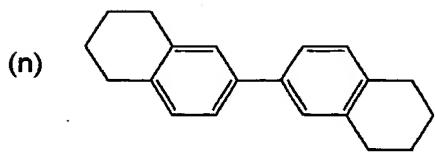
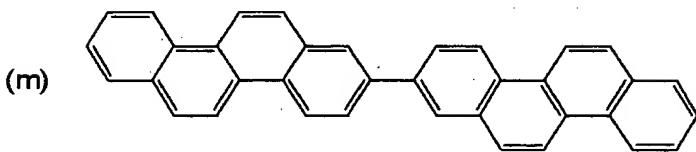
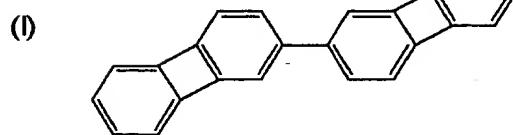
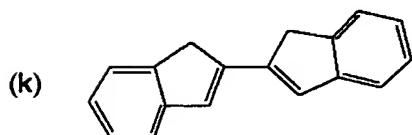
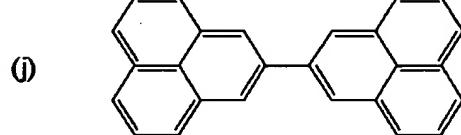
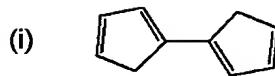
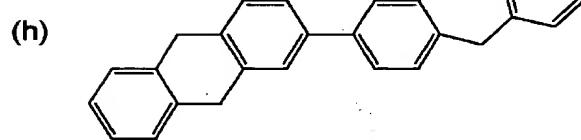
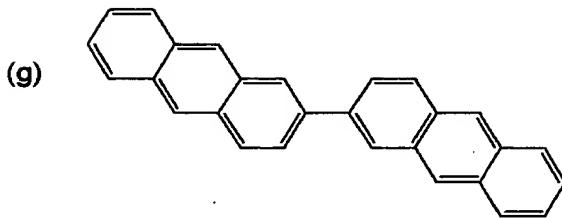
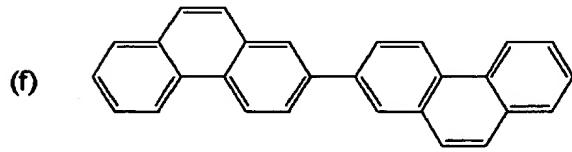
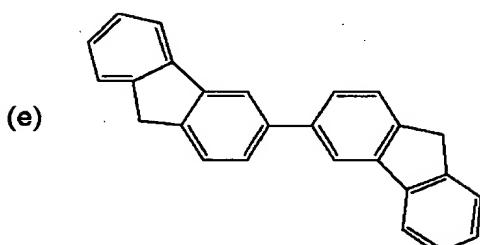
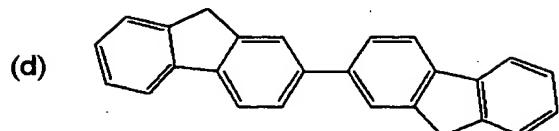
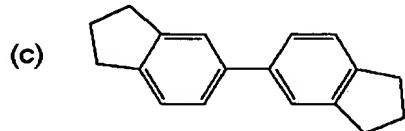
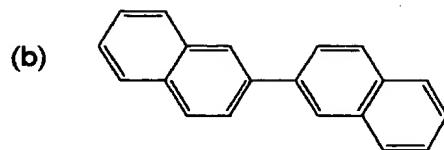
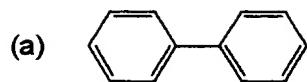
することが好ましい。より具体的には、単結合の片側についてである。

【0034】

さらに、上記一般式(1)におけるA_rが下記一般式(a)～(m)で示されるいずれかの構造を有することが好ましい。

【0035】

【化3】



【0036】

上記式中、CHはNまたはNHに、CH₂はSまたはOに置換されていても良い。

【0037】

またさらに、上記一般式(1)において、Arが下記一般式(2)で示される構造を有することが好ましい。

【0038】

A-B … (2)

上記式中、A、Bはそれぞれ独立に、フェニルージイル、ピリジンージイル、ピラジンージイル、ピリミジンージイル、ピリダジンージイル、インデンージイル、インドリジンージイル、イソインドールージイル、インドールージイル、プリンージイル、ナフタレンージイル、キノリンージイル、イソキノリンージイル、キノキサリンージイル、[1, 5]ナフチリジンージイル、[1, 6]ナフチリジンージイル、[1, 7]ナフチリジンージイル、[1, 8]ナフチリジンージイル、キナゾリンージイル、シンノリンージイル、ピリド[2, 3-b]ピラジンージイル、ピラジノ[2, 3-b]ピラジンージイル、プレリジンージイル、ビフェニレンージイル、フルオレンージイル、カルバゾールージイル、チアントレンージイル、フェナレンージイル、フェナントリジンージイル、フェナントレンージイル、アントラセンージイル、クリセンージイル、アクリジンージイル、ペリミジンージイル、フェナントロリンージイル、フェナジンージイル、フェノチアジンージイル、フェノキサジンージイル、インダンージイル、クマランージイル、フタランージイル、クロマンージイル、イソクロマンージイル、チアクロマンージイル、イソチアクロマンージイル、チアキサンテンージイルのいずれかである。

【0039】

特に、上記一般式(2)におけるAがキノキサリンージイルである事が好ましい。

【0040】

さらにまた、上記一般式(1)において、R=R'、X=X'、m=n=1で

あり、ArがA-B (A=B) で示される構造を有し、点対称構造を有する事が好ましい。

【0041】

以下に、本発明にかかる、構造異性体混合物を構成する有機化合物の分子設計指針をまとめて示す。

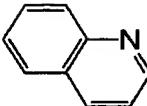
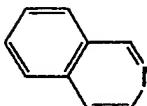
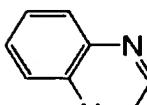
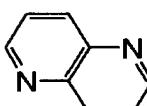
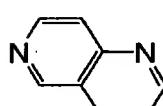
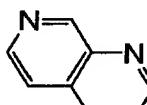
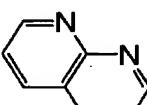
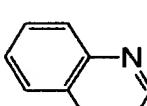
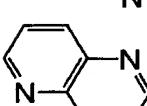
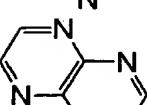
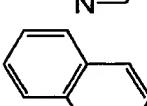
【0042】

〔1〕 LUMO準位の低下

電子輸送は、液晶分子のLUMO（最低非占有分子軌道）上をホッピング伝導するため、LUMOへの電極からの注入が問題となる。一般に電極の化学的安定性を考えると、仕事関数を小さくすることが出来ないので、如何に化合物のLUMO準位を低下させるかが大きなポイントである。LUMO準位を予測するためには、分子軌道法を用い本発明の化合物の一部に用いられる環構造のHOMO（最高占有分子軌道）／LUMO（最低非占有分子軌道）準位を計算した（分子軌道計算には、半経験的計算のAM1法を用いた）。

【0043】

【化4】

		HOMO	LUMO
	キノリン	-9.2	-0.47
	イソキノリン	-9.0	-0.56
	キノキサリン	-9.6	-0.68
	[1,5]ナフチリジン	-9.7	-0.67
	[1,6]ナフチリジン	-9.5	-0.77
	[1,7]ナフチリジン	-9.5	-0.76
	[1,8]ナフチリジン	-9.8	-0.71
	キナゾリン	-9.5	-0.77
	ピリド[2,3-b]ピラジン	-10.0	-0.93
	ピラジノ[2,3-b]ピラジン	-9.9	-1.21
	ナフタレン	-8.7	-0.27

【0044】

以上のように、LUMOの値がナフタレンに比して、ナフタレン骨格の炭素を1～4個置換したものは、LUMO準位を低下させる。従ってこれらのヘテロ縮合環を化合物の骨格に用いることで、LUMOが低下し電極からの電子注入性が

向上する。

【0045】

〔2〕分子構造の対称性

化合物の導電性を司るのは、前に述べたとおりホッピング伝導であり、隣接分子間の π 電子雲の重なり積分の大きさに依存している。この π 電子雲の重なりを大きくすることが導電性を持たせる大きなポイントである。分子に対称性を付与して、近接した位置に π 電子骨格を配置することにより、 π 電子重なり積分が大きくなり、キャリア移動度が向上して導電率が改善される。また、完全な対称性が無いとしても、例えば側鎖の長さがおおよそ等しく、類似の骨格構造を有している分子でも、この効果は失われないと考えられる。

【0046】

よって、本発明にかかる構造異性体混合物を構成する有機化合物としては、上記一般式（1）において、 $R = R'$ 、 $X = X'$ 、 $m = n = 1$ であり、 A_r が $A - B$ （ $A = B$ ）で示される構造を有し、点対称構造を有することが好ましい。

【0047】

〔3〕構造異性体存在下による結晶化の抑制

隣接分子間の π 電子雲の重なり積分の大きさを大きくすることは分子同士の規則性が高くなり、結晶性が高くなる。この結晶化を防ぐために π 電子雲の外部に異なる置換基を有する構造異性体を混合することにより、結晶性が低下し、アモルファス性を有することで高い導電性が得られると考えられる。

【0048】

よって、本発明にかかる構造異性体混合物からなる導電層は、アモルファス状態であることが望ましい。

【0049】

以上の3つの項目が、大きな設計指針ではあるが、必ずしも全てを満たしていく必要は無い。

【0050】

本発明者らは、以上の設計指針に基づいた有機化合物の構造異性体混合物を用いてなる導電層を有機EL素子のキャリア注入層或いはキャリア輸送層に用いる

ことで高効率の発光素子が実現できることを見出した。

【0051】

特に、後述する実施例で示されるように、上記の設計指針に基づいた有機化合物の構造異性体混合物を用いて電子注入層を形成することにより、電子注入性が大幅に改善される。

【0052】

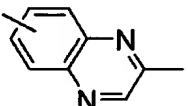
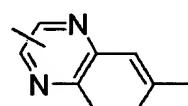
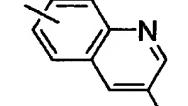
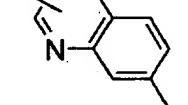
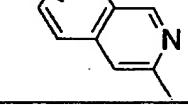
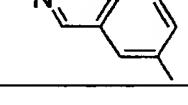
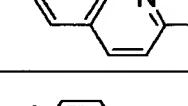
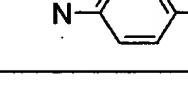
このような高効率な有機EL素子は、省エネルギー・高輝度が必要な製品に応用が可能である。応用例としては表示装置、照明装置やプリンタの光源、液晶表示装置のバックライトなどが考えられる。表示装置としては、省エネルギー・高視認性、軽量なフラットパネルディスプレイが可能となる。また、プリンタの光源としては、現在広く用いられているレーザビームプリンタのレーザー光源部を、本発明の有機EL素子に置き換えることができる。また、独立にアドレスできる素子をアレイ上に配置し、感光ドラムに所望の露光を行うことで画像形成するディスプレイを構成することもでき、本発明の有機EL素子を用いることで、装置体積を大幅に減少することができる。照明装置やバックライトに関しては、本発明による省エネルギー効果が期待できる。

【0053】

以下、本発明に用いられる、構造異性体混合物を構成する有機化合物の具体例の構造を表5～表15に示す。該具体例は、前記一般式(1)で示される化合物であり、表5～表15に使用している a_1 ～ a_{33} は表1～表4に示した環構造を表わしている。また、表5～表15に示した有機化合物の一般式(1)中の $m=n=1$ である。但し、これらは代表例を例示しただけであり、発明はこれらに限定されるものではない。

【0054】

【表1】

略号	環の名称	構造
a ₁	キノキサリン-ジイル	
a ₂		
a ₃	キノリン-ジイル	
a ₄		
a ₅	イソキノリン-ジイル	
a ₆		
a ₇	キノリン-ジイル	
a ₈		

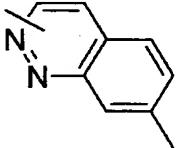
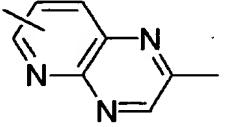
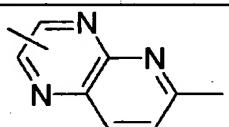
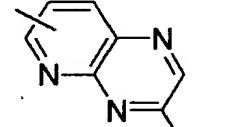
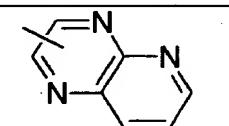
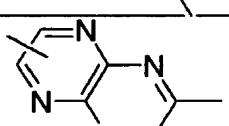
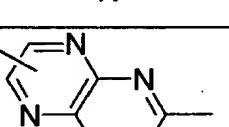
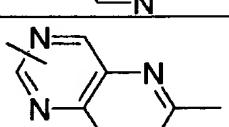
【0055】

【表2】

略号	環の名称	構造
a_9	[1, 5]ナフチリジン-ジイル	
a_{10}	[1, 6]ナフチリジン-ジイル	
a_{11}		
a_{12}	[1, 7]ナフチリジン-ジイル	
a_{13}		
a_{14}	[1, 8]ナフチリジン-ジイル	
a_{15}	キナゾリン-ジイル	
a_{16}		
a_{17}	シンノリン-ジイル	

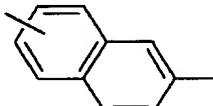
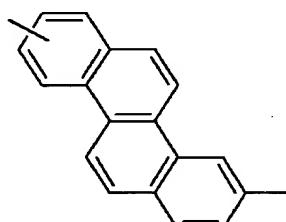
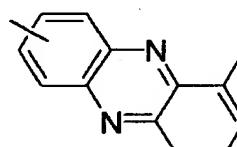
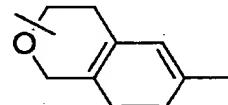
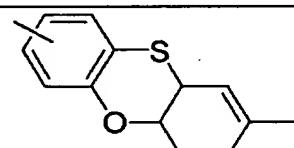
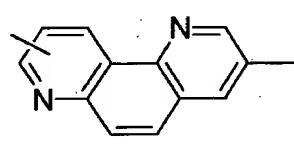
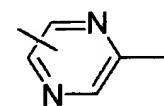
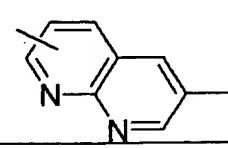
【0056】

【表3】

略号	環の名称	構造
a ₁₈	シンノリンージイル	
a ₁₉	ピリド[2,3-b]ピラジンージイル	
a ₂₀		
a ₂₁	ピリド[2,3-b]ピラジンージイル	
a ₂₂		
a ₂₃	ピラジノ[2,3-b]ピラジンージイル	
a ₂₄	プテリジンージイル	
a ₂₅		

【0057】

【表4】

略号	環の名称	構造
a ₂₆	ナフタレン-2,6-ジイル	
a ₂₇	クリセン-2,6-ジイル	
a ₂₈	フェナジン-ジイル	
a ₂₉	イソクロマン-ジイル	
a ₃₀	フェノキサチニ-ジイル	
a ₃₁	フェナントロリン-ジイル	
a ₃₂	ピラジン-ジイル	
a ₃₃	[1,8]ナフチリジン-ジイル	

【0058】

【表5】

No.	R	X	A	B	X'	R'
1	CH ₃	O	a ₁	a ₁	—	C ₇ H ₁₅
2	C ₈ H ₁₇	—	a ₁	a ₁	—	C ₁₁ H ₂₃
3	F	—	a ₁	a ₁	—	C ₂₀ H ₄₁
4	H	—	a ₁	a ₁	O	OC ₉ H ₁₉
5	C ₄ H ₉	O	a ₁	a ₁	—	C ₈ H ₁₇
6	C ₁₂ H ₂₅	O	a ₁	a ₁	—	C ₁₀ H ₂₁
7	C ₆ H ₁₃	O	a ₁	a ₁	O	C ₆ H ₁₃
8	C ₈ H ₁₇	O	a ₁	a ₁	O	C ₈ H ₁₇
9	C ₁₁ H ₂₃	O	a ₁	a ₁	O	C ₁₁ H ₂₃
10	C ₄ H ₉ OCH(CH ₃)CH ₂ (CH ₂) ₄	O	a ₁	a ₁	O	(CH ₂) ₄ CH ₂ CH(CH ₃)OC ₄ H ₉
11	C ₉ H ₁₉	O	a ₁	a ₁	O	(CH ₂) ₅ OC ₃ H ₇
12	C ₅ H ₁₁ OCH ₂₃	O	a ₁	a ₁	O	(CH ₂) ₃ OC ₅ H ₁₁
13	C ₅ H ₁₁	O	a ₁	a ₁	O	C≡CC ₆ H ₁₃
14	C ₅ H ₁₁ CH=CH	O	a ₁	a ₁	O	CH=CHC ₅ H ₁₁
15	C ₁₀ H ₂₁	S	a ₁	a ₁	S	C ₁₀ H ₂₁
16	C ₃ H ₇	—	a ₁	a ₁	—	C ₃ H ₇
17	C ₄ H ₉	—	a ₁	a ₁	—	C ₄ H ₉
18	C ₅ H ₁₁	—	a ₁	a ₁	—	C ₅ H ₁₁
19	C ₆ H ₁₃	—	a ₁	a ₁	—	C ₆ H ₁₃
20	C ₇ H ₁₅	—	a ₁	a ₁	—	C ₇ H ₁₅

【0059】

【表6】

No.	R	X	A	B	X'	R'
21	C ₈ H ₁₇	—	a ₁	a ₁	—	C ₈ H ₁₇
22	C ₉ H ₁₉	—	a ₁	a ₁	—	C ₉ H ₁₉
23	C ₁₀ H ₂₁	—	a ₁	a ₁	—	C ₁₀ H ₂₁
24	C ₁₁ H ₂₃	—	a ₁	a ₁	—	C ₁₁ H ₂₃
25	C ₁₂ H ₂₅	—	a ₁	a ₁	—	C ₁₂ H ₂₅
26	C ₁₈ H ₃₇	—	a ₁	a ₁	—	C ₁₈ H ₃₇
27	C ₆ H ₁₃	—	a ₁	a ₁	—	C ₈ H ₁₇
28	C ₁₁ H ₂₃	—	a ₁	a ₁	—	C ₃ H ₇
29	C ₆ H ₁₃	COO	a ₁	a ₁	OOC	C ₆ H ₁₃
30	C ₅ H ₁₁	COO	a ₁	a ₁	COO	C ₁₁ H ₂₃
31	C ₂ H ₅ CH(CH ₃)CH ₂ (CH ₂) ₄	OOC	a ₁	a ₁	COO	(CH ₂) ₅ CH(CH ₃)C ₂ H ₅
32	H	—	a ₁	a ₂₆	O	C ₄ H ₉
33	C ₈ H ₁₇	—	a ₁	a ₂₆	O	C ₅ H ₁₁
34	C ₁₁ H ₂₃	—	a ₁	a ₂₆	O	C ₁₀ H ₂₁
35	C ₉ H ₁₉	O	a ₁	a ₂₆	O	C ₉ H ₁₉
36	C ₁₅ H ₃₁	O	a ₁	a ₂₆	O	C ₇ H ₁₅
37	C ₁₃ H ₂₇	—	a ₁	a ₂₆	—	C ₃ H ₇
38	C ₆ H ₁₃	—	a ₁	a ₂₆	—	C ₆ H ₁₃
39	C ₉ H ₁₉	—	a ₁	a ₂₆	—	C ₉ H ₁₉
40	C ₃ H ₇	O	a ₂	a ₂	O	C ₁₄ H ₂₉

【0060】

【表7】

No.	R	X	A	B	X'	R'
41	C ₇ H ₁₅	—	a ₂	a ₂	—	C ₇ H ₁₅
42	C ₁₂ H ₂₅	—	a ₂	a ₂	—	C ₁₈ H ₃₇
43	H	—	a ₂	a ₂₆	O	C ₄ H ₉
44	C ₈ H ₁₇	—	a ₂	a ₂₆	—	C ₁₁ H ₂₃
45	C ₅ H ₁₁	—	a ₂	a ₂₆	O	(CH ₂) ₅ OC ₆ H ₁₃
46	C ₂ H ₅	O	a ₃	a ₃	—	C ₈ H ₁₇
47	C ₆ H ₁₃	—	a ₃	a ₃	—	C ₆ H ₁₃
48	C ₇ H ₁₅	—	a ₃	a ₃	—	C ₇ H ₁₅
49	C ₈ H ₁₇	—	a ₃	a ₃	—	C ₈ H ₁₇
50	C ₁₂ H ₂₅	—	a ₃	a ₃	—	C ₁₂ H ₂₅
51	C ₉ H ₁₉	O	a ₃	a ₃	O	C ₅ H ₁₁
52	C ₁₀ H ₂₁	—	a ₃	a ₂₆	O	C ₄ H ₉
53	C ₅ H ₁₁	—	a ₃	a ₂₆	—	C ₅ H ₁₁
54	C ₈ H ₁₇	—	a ₄	a ₄	—	C ₈ H ₁₇
55	C ₃ H ₇	—	a ₄	a ₂₆	O	C ₁₀ H ₂₁
56	C ₇ H ₁₅	—	a ₅	a ₅	—	C ₆ H ₁₃
57	C ₅ H ₁₁	O	a ₅	a ₅	—	C ₅ H ₁₁
58	C ₃ H ₇	O	a ₅	a ₅	—	C ₁₁ H ₂₃
59	H	—	a ₅	a ₅	O	C ₁₆ H ₃₃
60	C ₉ H ₁₉	O	a ₅	a ₅	O	C ₇ H ₁₅

【0061】

【表8】

No.	R	X	A	B	X'	R'
61	C ₆ H ₁₃	—	a ₅	a ₅	—	C ₆ H ₁₃
62	C ₇ H ₁₅	—	a ₅	a ₅	—	C ₇ H ₁₅
63	C ₈ H ₁₇	—	a ₅	a ₅	—	C ₈ H ₁₇
64	C ₁₃ H ₂₇	—	a ₅	a ₅	—	C ₅ H ₁₁
65	C ₁₀ H ₂₁	—	a ₅	a ₂₆	O	(CH ₂) ₅ C≡CCH ₃
66	C ₄ H ₉	—	a ₅	a ₂₆	—	C ₉ H ₁₉
67	C ₅ H ₁₁	—	a ₅	a ₂₆	—	C ₅ H ₁₁
68	C ₆ H ₁₃	—	a ₆	a ₆	—	C ₆ H ₁₃
69	C ₁₂ H ₂₅	—	a ₆	a ₆	—	C ₁₂ H ₂₅
70	C ₉ H ₁₉	—	a ₆	a ₂₆	O	C ₃ H ₇
71	C ₁₀ H ₂₁	—	a ₆	a ₂₆	—	C ₁₀ H ₂₁
72	C ₃ H ₇	—	a ₇	a ₇	—	C ₃ H ₇
73	C ₁₀ H ₂₁	—	a ₇	a ₇	—	C ₄ H ₉
74	C ₁₁ H ₂₃	—	a ₇	a ₇	O	(CH ₂) ₇ CH(CH ₃) ₂
75	C ₁₇ H ₃₅	O	a ₇	a ₇	—	C ₈ H ₁₇
76	C ₇ H ₁₅	—	a ₇	a ₇	—	C ₇ H ₁₅
77	C ₈ H ₁₇	—	a ₇	a ₇	—	C ₈ H ₁₇
78	C ₉ H ₁₉	—	a ₇	a ₇	—	C ₉ H ₁₉
79	C ₁₀ H ₂₁	—	a ₇	a ₇	—	C ₁₀ H ₂₁
80	C ₁₁ H ₂₃	—	a ₇	a ₇	—	C ₃ H ₇

【0062】

【表9】

No.	R	X	A	B	X'	R'
81	C ₇ H ₁₅	—	a ₇	a ₂₆	O	CH ₃
82	C ₇ H ₁₅	—	a ₇	a ₂₆	OOC	C ₄ H ₉
83	C ₈ H ₁₇	—	a ₇	a ₂₆	—	C ₈ H ₁₇
84	C ₇ H ₁₅	—	a ₈	a ₈	—	C ₇ H ₁₅
85	C ₈ H ₁₇	—	a ₈	a ₈	—	C ₈ H ₁₇
86	C ₁₂ H ₂₅	—	a ₈	a ₂₆	O	C ₅ H ₁₁
87	C ₁₈ H ₃₇	—	a ₈	a ₂₆	—	C ₄ H ₉
88	C ₇ H ₁₅	—	a ₉	a ₉	—	C ₇ H ₁₅
89	C ₈ H ₁₇	—	a ₉	a ₉	—	C ₈ H ₁₇
90	C ₉ H ₁₉	—	a ₉	a ₉	—	C ₉ H ₁₉
91	C ₄ H ₉	—	a ₉	a ₉	—	C ₄ H ₉
92	C ₁₅ H ₃₁	—	a ₉	a ₉	—	C ₁₅ H ₃₁
93	C ₅ H ₁₁	—	a ₉	a ₉	—	C ₈ H ₁₇
94	C ₁₀ H ₂₁	—	a ₉	a ₉	—	C ₆ H ₁₃
95	C ₆ H ₁₃	—	a ₉	a ₂₆	COO	(CH ₂) ₃ OC ₃ H ₇
96	C ₉ H ₁₉	—	a ₉	a ₂₆	—	C ₉ H ₁₉
97	C ₇ H ₁₅	—	a ₁₀	a ₁₀	O	C ₆ H ₁₃
98	C ₇ H ₁₅	—	a ₁₀	a ₁₀	—	C ₇ H ₁₅
99	C ₁₀ H ₂₁	—	a ₁₀	a ₁₀	—	C ₁₀ H ₂₁
100	C ₅ H ₁₁	—	a ₁₀	a ₂₆	O	C ₁₁ H ₂₃

【0063】

【表10】

No.	R	X	A	B	X'	R'
101	C ₈ H ₁₇	—	a ₁₀	a ₂₆	—	C ₁₂ H ₂₅
102	C ₈ H ₁₇	—	a ₁₁	a ₁₁	—	C ₈ H ₁₇
103	C ₉ H ₁₉	—	a ₁₁	a ₁₁	—	C ₉ H ₁₉
104	C ₃ H ₇	O	a ₁₁	a ₁₁	—	C ₈ H ₁₇
105	C ₁₈ H ₃₇	O	a ₁₁	a ₂₆	O	C ₂ H ₅
106	C ₆ H ₁₃	—	a ₁₂	a ₁₂	—	C ₆ H ₁₃
107	C ₉ H ₁₉	—	a ₁₂	a ₁₂	—	C ₉ H ₁₉
108	C ₁₀ H ₂₁	—	a ₁₂	a ₁₂	—	C ₁₀ H ₂₁
109	C ₁₁ H ₂₃	—	a ₁₂	a ₁₂	—	C ₁₁ H ₂₃
110	C ₁₂ H ₂₅	—	a ₁₂	a ₁₂	—	C ₁₂ H ₂₅
111	C ₇ H ₁₅	—	a ₁₂	a ₂₆	O	C ₆ H ₁₁
112	C ₁₃ H ₂₇	—	a ₁₂	a ₂₆	—	C ₁₀ H ₂₁
113	C ₄ H ₉	—	a ₁₃	a ₁₃	—	C ₄ H ₉
114	C ₉ H ₁₉	—	a ₁₃	a ₁₃	S	C ₈ H ₁₇
115	C ₅ H ₁₁	—	a ₁₄	a ₁₄	—	C ₅ H ₁₁
116	C ₇ H ₁₅	O	a ₁₄	a ₁₄	—	C ₉ H ₁₉
117	C ₁₀ H ₂₁	—	a ₁₄	a ₃₃	O	(CH ₂) ₃ OC ₅ H ₁₁
118	C ₇ H ₁₅	—	a ₁₄	a ₃₃	—	C ₇ H ₁₅
119	C ₁₂ H ₂₅	—	a ₁₄	a ₃₃	—	C ₁₂ H ₂₅
120	C ₈ H ₁₇	—	a ₁₄	a ₂₆	—	C ₄ H ₉

【0064】

【表11】

No.	R	X	A	B	X'	R'
121	C ₆ H ₁₃	—	a ₁₄	a ₂₆	—	C ₆ H ₁₃
122	C ₃ H ₇	—	a ₃₃	a ₁₄	—	C ₁₆ H ₃₁
123	C ₈ H ₁₇	—	a ₃₃	a ₂₆	O	C ₈ H ₁₇
124	C ₃ H ₇	O	a ₁₅	a ₁₅	—	C ₁₀ H ₂₁
125	C ₇ H ₁₅	—	a ₁₅	a ₁₅	—	C ₇ H ₁₅
126	C ₅ H ₁₁	—	a ₁₅	a ₁₅	O	C ₇ H ₁₅
127	C ₄ H ₉	—	a ₁₅	a ₁₅	—	C ₄ H ₉
128	C ₅ H ₁₁	—	a ₁₅	a ₁₅	—	C ₅ H ₁₁
129	C ₆ H ₁₃	—	a ₁₅	a ₁₅	—	C ₆ H ₁₃
130	C ₇ H ₁₅	—	a ₁₅	a ₁₅	—	C ₇ H ₁₅
131	C ₈ H ₁₇	—	a ₁₅	a ₁₅	—	C ₈ H ₁₇
132	C ₁₂ H ₂₅	—	a ₁₅	a ₁₅	—	C ₃ H ₇
133	H	—	a ₁₅	a ₂₆	O	C ₁₆ H ₃₃
134	C ₁₀ H ₂₁	—	a ₁₅	a ₂₆	—	C ₁₀ H ₂₁
135	C ₈ H ₁₇	—	a ₁₆	a ₁₆	—	C ₈ H ₁₇
136	C ₁₈ H ₃₇	—	a ₁₆	a ₁₆	—	C ₁₈ H ₃₇
137	C ₆ H ₁₃	—	a ₁₆	a ₂₆	—	C ₆ H ₁₃
138	C ₁₁ H ₂₃	—	a ₁₆	a ₂₆	O	C ₂ H ₅
139	C ₈ H ₁₇ C≡C	O	a ₁₇	a ₁₇	—	C ₁₀ H ₂₁
140	C ₉ H ₁₉	—	a ₁₇	a ₁₈	O	C ₃ H ₇

【0065】

【表12】

No.	R	X	A	B	X'	R'
141	C ₇ H ₁₅	—	a ₁₇	a ₁₇	—	C ₇ H ₁₅
142	C ₈ H ₁₇	—	a ₁₇	a ₁₇	—	C ₈ H ₁₇
143	C ₉ H ₁₉	—	a ₁₇	a ₁₇	—	C ₉ H ₁₉
144	C ₁₀ H ₂₁	—	a ₁₇	a ₂₆	—	C ₁₀ H ₂₁
145	C ₅ H ₁₁	—	a ₁₈	a ₁₈	—	C ₅ H ₁₁
146	C ₇ H ₁₅	—	a ₁₈	a ₂₆	O	C ₁₂ H ₂₅
147	C ₈ H ₁₇	—	a ₁₉	a ₁₉	—	C ₈ H ₁₇
148	C ₄ H ₉	—	a ₁₉	a ₁₉	—	C ₄ H ₉
149	C ₇ H ₁₅	—	a ₁₉	a ₁₉	—	C ₇ H ₁₅
150	C ₁₀ H ₂₁	—	a ₁₉	a ₁₉	—	C ₁₀ H ₂₁
151	C ₈ H ₁₇	—	a ₁₉	a ₂₆	O	C ₁₀ H ₂₁
152	C ₇ H ₁₅	—	a ₁₉	a ₂₆	—	C ₇ H ₁₅
153	C ₉ H ₁₉	—	a ₂₀	a ₂₀	—	C ₉ H ₁₉
154	C ₁₂ H ₂₅	—	a ₂₀	a ₂₀	—	C ₅ H ₁₁
155	C ₈ H ₁₇	—	a ₂₁	a ₂₁	—	C ₈ H ₁₇
156	C ₆ H ₁₃	O	a ₂₁	a ₂₁	—	C ₁₁ H ₂₃
157	C ₁₀ H ₂₁	—	a ₂₁	a ₂₁	O	C ₄ H ₉
158	C ₅ H ₁₁	—	a ₂₁	a ₂₁	—	C ₅ H ₁₁
159	C ₁₁ H ₂₃	—	a ₂₁	a ₂₁	—	C ₁₁ H ₂₃
160	C ₄ H ₉	—	a ₂₁	a ₂₆	O	C ₁₂ H ₂₅

【0066】

【表13】

No.	R	X	A	B	X'	R'
161	C ₁₉ H ₃₉	—	a ₂₁	a ₂₆	—	H
162	C ₁₃ H ₂₇	—	a ₂₂	a ₂₂	—	C ₃ H ₇
163	C ₇ H ₁₅	—	a ₂₂	a ₂₆	—	C ₇ H ₁₅
164	C ₅ H ₁₁	—	a ₂₃	a ₂₃	—	C ₅ H ₁₁
165	C ₇ H ₁₅	—	a ₂₃	a ₂₃	—	C ₇ H ₁₅
166	C ₁₀ H ₂₁	—	a ₂₃	a ₂₃	—	C ₁₀ H ₂₁
167	C ₄ H ₉	—	a ₂₃	a ₂₃	—	C ₉ H ₁₉
168	C ₁₂ H ₂₅	—	a ₂₃	a ₂₆	O	(CH ₂) ₇ CH(CH ₃)OC ₂ H ₅
169	C ₃ H ₇	—	a ₂₄	a ₂₄	—	C ₃ H ₇
170	C ₆ H ₁₃	—	a ₂₄	a ₂₄	—	C ₆ H ₁₃
171	C ₇ H ₁₅	—	a ₂₄	a ₂₄	—	C ₇ H ₁₅
172	C ₈ H ₁₇	—	a ₂₄	a ₂₄	—	C ₈ H ₁₇
173	C ₁₁ H ₂₃	—	a ₂₄	a ₂₄	—	C ₁₁ H ₂₃
174	C ₉ H ₁₉	—	a ₂₄	a ₂₆	O	C ₅ H ₁₁
175	C ₆ H ₁₃	—	a ₂₅	a ₂₄	—	C ₄ H ₉
176	C ₁₇ H ₃₅	—	a ₂₅	a ₂₅	—	C ₁₇ H ₃₅
177	C ₇ H ₁₅	O	a ₂₇	a ₂₇	—	C ₇ H ₁₅
178	C ₈ H ₁₇	—	a ₂₈	a ₂₆	—	C ₉ H ₁₉
179	CH ₃	—	a ₂₉	a ₄	—	C ₁₀ H ₂₁
180	C ₉ H ₁₉	O	a ₃₀	a ₃₀	—	C ₁₁ H ₂₃

【0067】

【表14】

No.	R	X	A	B	X'	R'
181	C ₄ H ₉	—	a ₃₁	a ₂₅	—	C ₁₂ H ₂₅
182	C ₁₅ H ₃₁	—	a ₃₂	a ₂₆	—	C ₁₅ H ₃₁
183	C ₈ H ₁₇	—	a ₁	a ₄	—	C ₈ H ₁₇
184	C ₅ H ₁₁	—	a ₁	a ₆	—	C ₅ H ₁₁
185	C ₁₂ H ₂₅	—	a ₁	a ₆	—	C ₁₂ H ₂₅
186	C ₇ H ₁₅	—	a ₁	a ₇	—	C ₇ H ₁₅
187	C ₅ H ₁₁	—	a ₁	a ₈	—	C ₁₁ H ₂₃
188	C ₉ H ₁₉	—	a ₁	a ₉	—	C ₉ H ₁₉
189	C ₆ H ₁₃	—	a ₁	a ₁₀	—	C ₆ H ₁₃
190	C ₄ H ₉	—	a ₁	a ₁₄	—	C ₄ H ₉
191	C ₇ H ₁₅	—	a ₁	a ₁₆	—	C ₇ H ₁₅
192	C ₁₁ H ₂₃	—	a ₁	a ₁₈	—	C ₁₁ H ₂₃
193	C ₈ H ₁₇	—	a ₁	a ₂₅	—	C ₉ H ₁₉
194	C ₅ H ₁₁	—	a ₃	a ₆	—	C ₅ H ₁₁
195	C ₁₀ H ₂₁	—	a ₇	a ₁₀	—	C ₃ H ₇
196	C ₆ H ₁₃	—	a ₇	a ₂₂	—	C ₆ H ₁₃
197	C ₇ H ₁₅	—	a ₁₄	a ₁₈	—	C ₁₀ H ₂₁
198	C ₄ H ₉	—	a ₁₅	a ₂₅	—	C ₄ H ₉
199	C ₆ H ₁₃	—	a ₁	a ₂₅	—	C ₅ H ₁₁
200	C ₈ H ₁₇	—	a ₂₄	a ₂₆	—	C ₈ H ₁₇

【0068】

【表15】

No.	R	X	A	B	X'	R'
201	C ₂ H ₅ OC ₃ H ₆	—	a ₁	a ₁	—	C ₂ H ₅ OC ₃ H ₆
202	C ₃ H ₇ OC ₃ H ₆	—	a ₁	a ₁	—	C ₃ H ₇ OC ₃ H ₆
203	C ₄ H ₉ OC ₃ H ₆	—	a ₁	a ₁	—	C ₄ H ₉ OC ₃ H ₆
204	(CH ₃) ₂ CHCH ₂ CH ₂ CH ₂	—	a ₁	a ₁	—	CH ₂ CH ₂ CH ₂ CH(CH ₃) ₂
205	(CH ₃) ₂ CHCH ₂ CH ₂ CH ₂ CH ₂	—	a ₁	a ₁	—	CH ₂ CH ₂ CH ₂ CH ₂ CH(CH ₃) ₂
206	CH ₃ CH ₃ CH ₂ CHCH ₂ CH ₂ CH ₂	—	a ₁	a ₁	—	CH ₃ CH ₂ CH ₂ CH ₂ CHCH ₂ CH ₃

【0069】

本発明の導電素子は、上記構造異性体混合物からなる導電層を電極間に挟持することにより、素子の電流特性向上を図り、良好な素子特性を得ることができる。当該導電層は、金属との高接合効率や高移動度が実現できるため、当該導電素子を種々の半導体デバイスに応用する事が可能である。

【0070】

本発明の導電素子の基本構成は、一対の電極間に、上記構造異性体混合物からなる導電層を挟持してなる。本発明にかかる電極の構成は特に限定されず、応用されるデバイスに要求される特性、構造に応じて適宜選択される。

【0071】

また、本発明の有機EL素子は、上記構造異性体混合物からなる導電層をキャリア注入層或いはキャリア輸送層として用いることにより、電極からのキャリア注入特性や輸送性の向上を図り、良好な発光特性を得ることができる。

【0072】

本発明の有機EL素子の基本構成は、一対の電極間に、構造異性体混合物からなる導電層をキャリア注入層或いはキャリア輸送層として挟持し、さらに、発光層を挟持してなる。即ち、図6、図7に例示した構造を好ましく採ることができ、陽極22、陰極25、発光層24の素材としては、従来用いられていたものを

そのまま用いることができる。また、図6、図7に示したように、必要に応じて透明基板21を用いることもできる。

【0073】

具体的には、陽極22は透明導電材からなり、ITO、IZOが好ましく用いられる。ITOとしてはIn₂O₃に対しSnO₂を1~30重量%加えたもの、IZOとしてはIn₂O₃に対しZnOを5~30重量%加えたものがそれぞれ低い抵抗値が得られることから好ましく用いられる。陽極には他に、酸化インジウム、酸化錫、Cd₂SnO₄、酸化亜鉛、ヨウ化銅、金、白金などが挙げられる。

【0074】

また、陰極25には、蒸着法、スパッタリング法などで成膜される仕事関数の小さい金属、化合物又は合金で構成される。仕事関数の小さい材料としては、K、Li、Na、Mg、La、Ce、Ca、Cr、Baなどの金属元素、BaO、BaS、CaO、HfC、LaB₆、MgO、MoC、NbC、PbS、SrOなどの化合物、或いは安定性を向上させるための合金材料を用いる。合金材料としては、Al-Ca(Ca:1~30重量%)、Al-Li(Li:0.5~10重量%)などが挙げられる。

【0075】

発光層24には、例えばAlq3(トリス(8-キノラリト)アルミニウム)や、BeBq(ビス(ベンゾキノリノラト)ベリリウム錯体)、DTVBi(4,4'-ビス-(2,2-ジ-*p*-トリル-ビニル)-ビフェニル)、Eu(DBM)3(Phen)(トリス(1,3-ジフェニル-1,3-プロパンジオノ)モノフェナントロリン)Eu(III)、さらには、ジフェニルエチレン誘導体、トリフェニルアミン誘導体、ジアミノカルバゾール誘導体、ビススチリル誘導体、ベンゾチアゾール誘導体、ベンゾオキサゾール誘導体、芳香性ジアミン誘導体、キナクリドン系化合物、ペリレン系化合物、オキサジアゾール誘導体、クマリン系化合物、アントラキノン誘導体などが挙げられる。これらの材料は、真空蒸着法によってアモルファス状態で好ましく積層される。

【0076】

また、上記構造異性体混合物からなる導電層としては、図6、図7の正孔輸送

層22、電子輸送層31、或いは、図示していない正孔注入層、電子注入層のいずれか1層或いは2層以上に用いる。該導電層以外のキャリア注入層、キャリア輸送層としては、従来の部材をそのまま用いることができる。

【0077】

特に本発明の有機EL素子においては、上記構造異性体混合物からなる導電層を電子注入層に用いることが好ましい。即ち、有機EL素子においては一般に陽極から有機化合物層への正孔の注入に比べて、陰極から有機化合物層へ電子を注入する方が困難である。これは、金属の仕事関数を有機材料のLUMO準位に比べて小さくすることが金属材料の安定性の低さから難しいことに起因する。従って、陰極と陽極の間に一層または複数層の有機化合物薄膜を挟持して構成される有機EL素子においては、上記構造異性体混合物からなる導電層を電子注入層として用いることが好ましい。このように構成することによって、従来蒸着膜の結晶化のために使用できなかった平面性の高い分子構造の分子を使えるようになり、使用材料の選択範囲が広がる。

【0078】

正孔輸送層の材料には、例えばトリフェニルジアミン誘導体（代表的な例としては、下記構造式で示される α -NPD（ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニル]ベンジジン）が挙げられる）など電子供与性を有する材料が用いられる。また、正孔注入層の材料としては、例えば、テトラアリールベンジジン化合物（トリフェニルジアミン）、ヒドラゾン誘導体、カルバゾール誘導体、トリアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、ポリチオフェン等である。

【0079】

また、電子注入層を設ける場合、その材料としては、先に挙げたA1q3等のキノリン誘導体の他、オキサジアゾール誘導体、ペリレン誘導体等を用いることができる。

【0080】

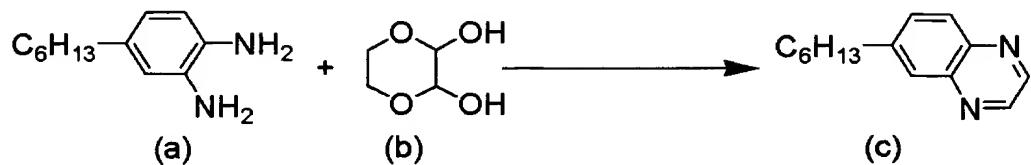
【実施例】

(実施例1)

以下に、表5中に記載した、例示化合物19の合成経路及び合成法を示す。

【0081】

【化5】

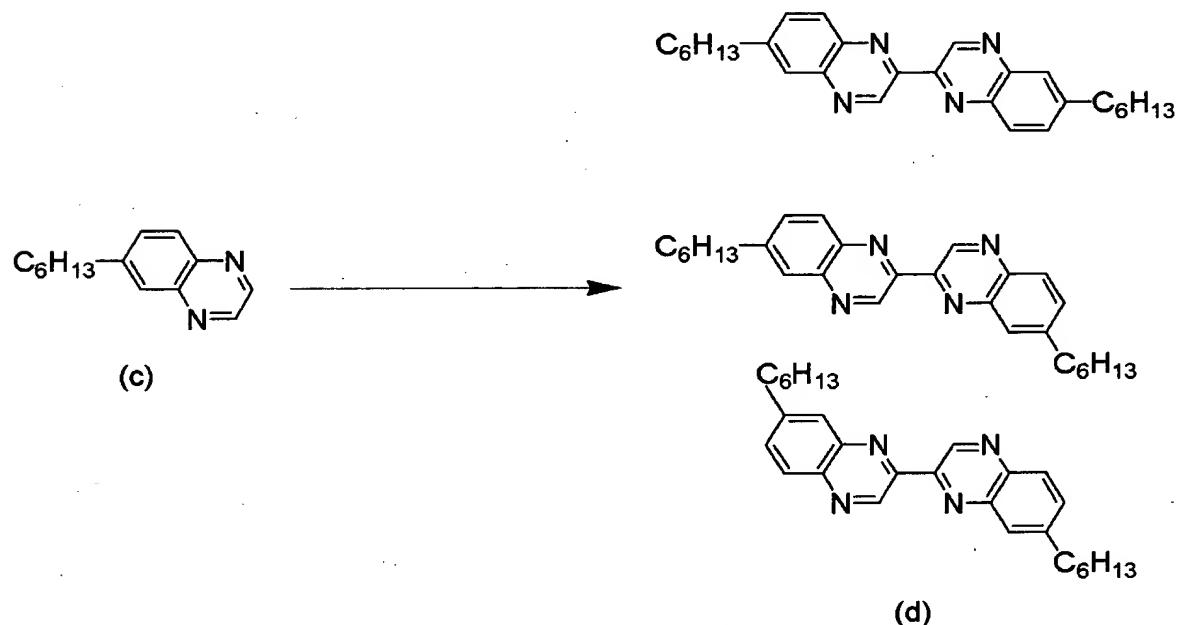


【0082】

1, 2-ジアミノ-4-ヘキシルベンゼン (a) を 64 g (371. 1 ミリモル) と 1, 4 ジオキサン-2, 3-ジオール (b) を 49. 5 g (412. 1 ミリモル)、2000 ml ナスフラスコに入れ、エタノール 793 ml に溶解させて室温で終夜攪拌を行った。反応後、濃縮（減圧下での溶媒除去）し、トルエン／酢酸エチル = 1 / 4 でカラムクロマトグラフィを行い、濃縮することによって 53. 3 g の 6-ヘキシルキノキサリン (c) を得た。

【0083】

【化6】



【0084】

6-ヘキシルキノキサリン (a) を 53. 3 g (256. 6 ミリモル) と ピリジン-1-オキサイドを 31 g (258. 8 ミリモル)、パラジウムカーボン 2

0 g を 200 ml ナスフラスコに入れて終夜、加熱還流攪拌を行った。冷却した後、濾過を行い濃縮した。濃縮物をエタノールで分散洗浄し、濾過を行い、ピリジンを用いて再結晶を行い、粗生成物を得た。この結晶を再びクロロホルムに溶解後、アルミナを用いて濾過を行い、濾液とトルエンを用いて再結晶を行い、例示化合物 19 である 2, 2' - ビヘキシルキノキサリン (d) の構造異性体混合物 10.4 g を得た。

[0085]

上記構造異性体混合物は、以下の相転移を有する。

[0086]

〔化7〕

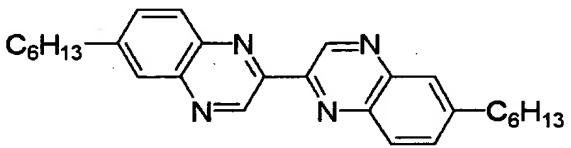
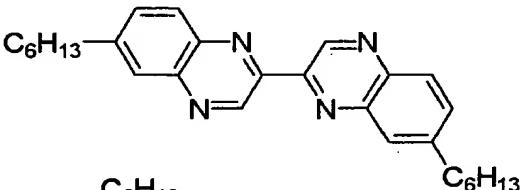
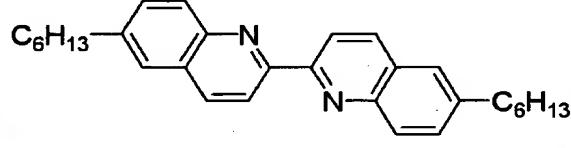
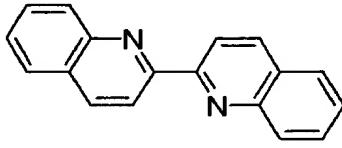
$$\text{Cryst.} \xrightleftharpoons[134.4]{154.5} \text{Iso}$$

[0087]

上記例示化合物1~9の構造異性体混合物と他の化合物との結晶性の比較を行った。評価は、各化合物を厚さ20nmに蒸着して、30℃での結晶化の時間を観察した。結果を表16に示す。

[0088]

【表16】

化合物	30°Cでの結晶化時間	電流特性
		
	72 h <	◎
		
例示化合物19		
	12	○
	0	×

【0089】

上記の結果より、例示化合物19の構造異性体混合物を用いることにより、單一分子と比較して安定したアモルファス構造が得られることがわかった。表中の電流特性の測定は、室温にて、ヒューレットパッカード社製の微小電流計「4140B」で測定した。ちなみに発光輝度はトプコン社製「BM7」で測定し、表中「◎」は大変良く流れた、「○」は良く流れた、「×」はあまり良く流れなか

ったことを示す。

【0090】

(実施例2)

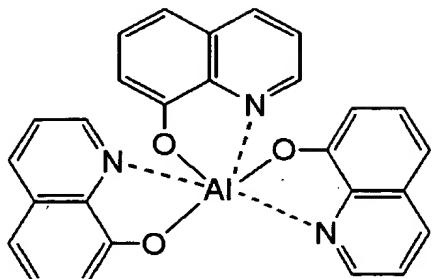
実施例1で製造した例示化合物19を用いて、図1に模式的に示す断面構造を有する有機EL素子を作製した。図1中、11はガラス基板、12は陽極、13は正孔輸送層、14a～14cは発光層、15は陰極、16は電子輸送層である。

【0091】

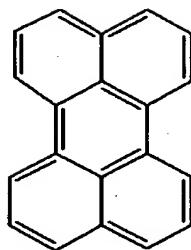
1mmの厚さのガラス基板11上に、スパッタリング法によりITOを70nmの厚さで形成し、紫外線照射による表面洗浄を行い、陽極12を作製した。この陽極12上に、正孔輸送層13として下記構造を有する α -NPDを真空蒸着法により50nmの膜厚で形成した。真空蒸着槽内の圧力は約 1.33×10^{-3} Pa(約 1×10^{-5} torr)であり、加熱による蒸着速度は0.1nm/secであった。次いで、同様の条件で発光層14a～14cを50nmの膜厚で形成した。この発光層14a～14cは、複数の発光波長をとれるように、マスク蒸着により3種の異なる有機化合物層を用いた。該有機化合物層のホスト材料としては下記構造を有するA1q3を用い、ドーピング材料として下記構造を有するペリレン(5重量%)を用いて発光波長を短波長側にシフトさせた層と、下記構造を有するDCM(スチリル系色素；5重量%)を用いて発光波長を長波長側にシフトさせた層、そして中心波長にはドーパントを用いないA1q3層を用いた。その上に、例示化合物19を膜厚20nmに蒸着して電子注入層16とした。

【0092】

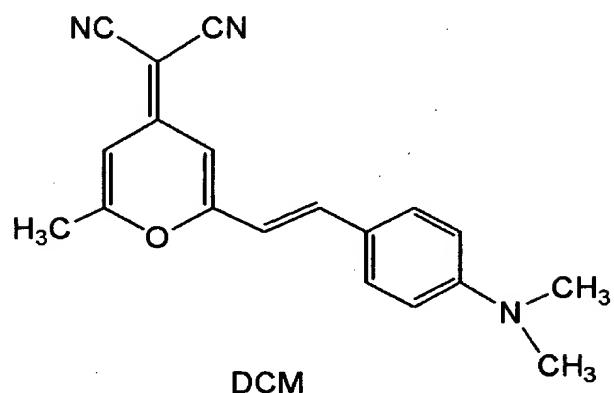
【化 8】



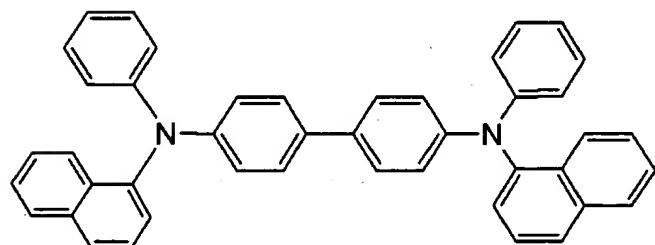
Alq3



ペリレン



DCM



α - NPD

[0093]

さらに、上記電子注入層16上に、Al/Li (Li: 1.8重量%) 合金膜を真空蒸着によって10nmの厚さに形成し、その上にAlを150nmの厚さに真空蒸着して、2層構成の陰極15を形成し、有機EL素子を作製した。

[0094]

得られた素子のドーパントを加えていない発光層部分における素子の電流電圧特性を測定した結果を図2に、発光効率を測定した結果を図4に示す。これらの

図から、本例の有機EL素子においては、電界に対して整流性を持ち、高電流密度が得られたことがわかる。また、発光効率に関しても、高効率が確認された。

【0095】

下記比較例よりも電界強度が低い（有機化合物層が厚い）にもかかわらず、高電流が得られたことで、本例の導電層（電子注入層）によって、陰極からの電子の注入効率が向上したと考えられる。

【0096】

（比較例1）

例示化合物19で形成した電子注入層を形成しない以外は実施例2と同様にして有機EL素子を作製し、実施例1と同様にドーパントを加えていない発光層部分における素子の電流電圧特性を測定した結果を図3に、発光効率を測定した結果を図5に示す。

【0097】

図3に示すように、本例の素子では電流密度は実施例2の素子よりも低い値が得られた。本例の素子では、実施例2の素子よりも電界強度が強いにも関わらず、電流値が低いことから、電子注入性が実施例2よりも劣っていることがわかった。

【0098】

【発明の効果】

以上説明したように、本発明の導電素子は、キャリア注入性、輸送性に優れた導電層を備えていることから、半導体デバイス等各種デバイスに応用してその特性の向上を図ることができる。特に、該導電層をキャリア注入層或いはキャリア輸送層として用いた本発明の有機EL素子は、発光効率が向上し、また、電流電圧特性が向上したことから、より厚い有機化合物層とすることもでき、電極間ショートを防止する等、信頼性の向上を図ることもできる。

【図面の簡単な説明】

【図1】

実施例2で作製した有機EL素子の断面模式図である。

【図2】

実施例2の有機EL素子の電流電圧特性を示す図である。

【図3】

実施例2の有機EL素子の発光効率を示す図である。

【図4】

比較例1の有機EL素子の電流電圧特性を示す図である。

【図5】

比較例1の有機EL素子の発光効率を示す図である。

【図6】

有機EL素子の基本構成を示す断面模式図である。

【図7】

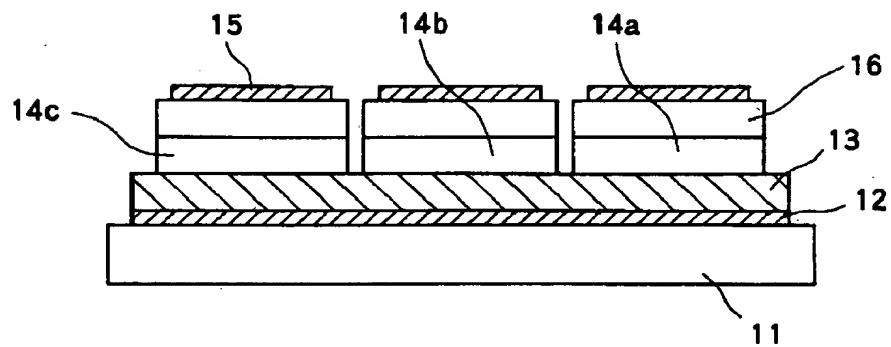
有機EL素子の他の構成を示す断面模式図である。

【符号の説明】

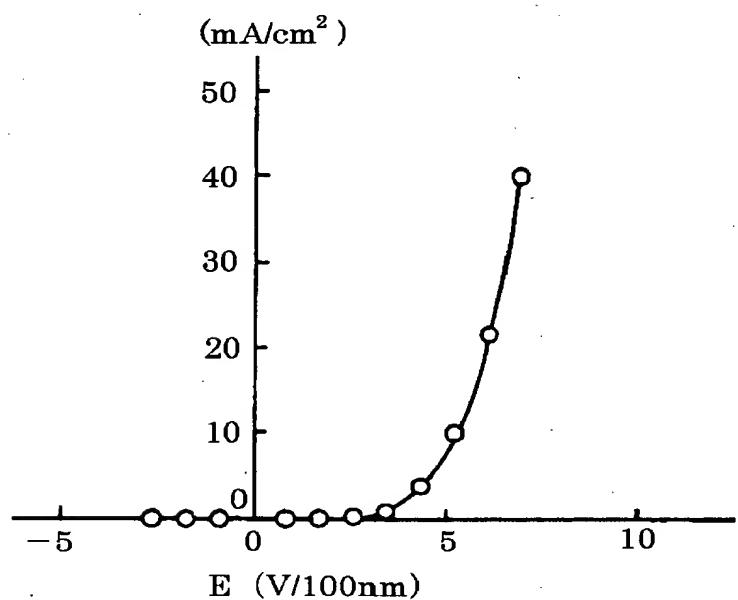
- 1 1 ガラス基板
- 1 2 陽極
- 1 3 正孔輸送層
- 1 4 a ~ 1 4 c 発光層
- 1 5 陰極
- 1 6 電子輸送層
- 2 0 有機化合物層
- 2 1 透明基板
- 2 2 陽極
- 2 3 正孔輸送層
- 2 4 発光層
- 2 5 陰極
- 3 1 電子輸送層

【書類名】 図面

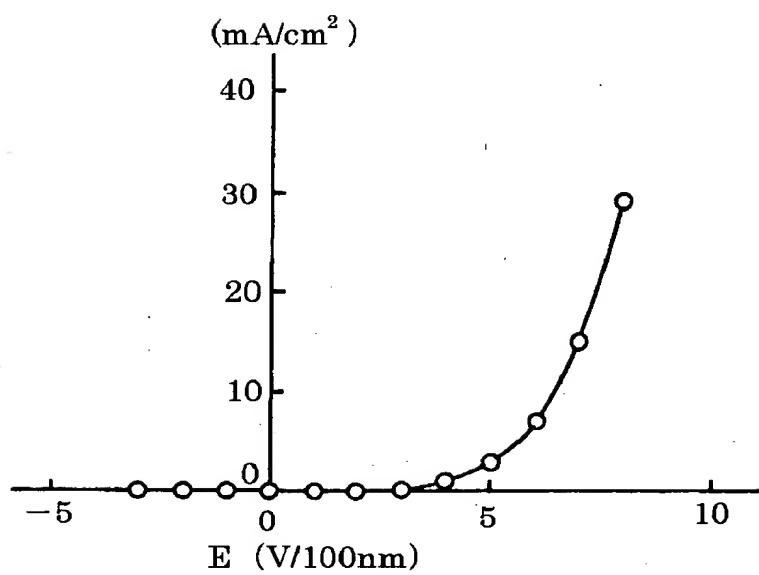
【図1】



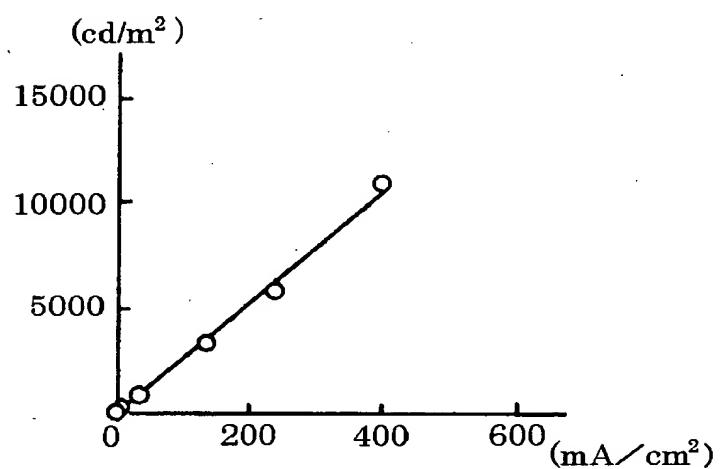
【図2】



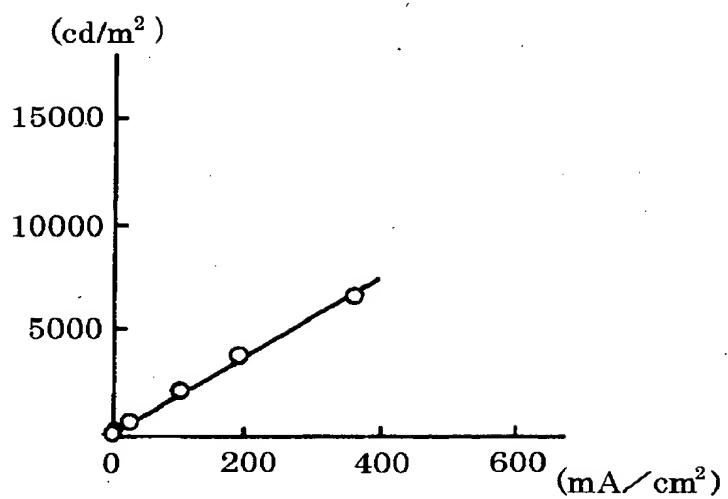
【図3】



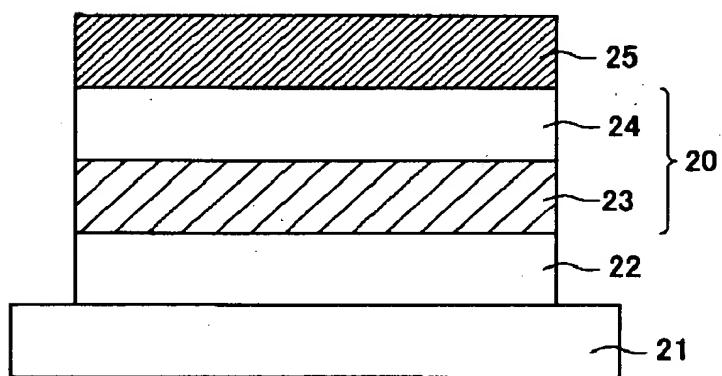
【図4】



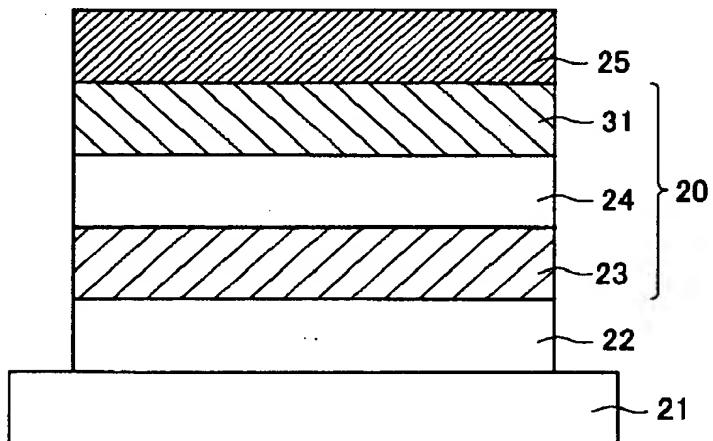
【図5】



【図6】



【図7】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 有機エレクトロルミネッセンス素子において、キャリア注入性、輸送性の高いキャリア輸送層を形成し、発光効率の向上を図る。

【解決手段】 互いに構造異性体である複数の有機化合物の混合物を用いて電子輸送層、電子注入層を形成する。

【選択図】 なし

認定・付加情報

特許出願の番号	特願2001-286040
受付番号	50101383854
書類名	特許願
担当官	第四担当上席 0093
作成日	平成13年 9月26日

<認定情報・付加情報>

【特許出願人】

【識別番号】	000001007
--------	-----------

【住所又は居所】	東京都大田区下丸子3丁目30番2号
----------	-------------------

【氏名又は名称】	キヤノン株式会社
----------	----------

【代理人】

【識別番号】	100096828
--------	-----------

【住所又は居所】	東京都千代田区有楽町1丁目4番1号 三信ビル 229号室
----------	---------------------------------

【氏名又は名称】	渡辺 敬介
----------	-------

【選任した代理人】

【識別番号】	100059410
--------	-----------

【住所又は居所】	東京都千代田区有楽町1丁目4番1号 三信ビル 229号室
----------	---------------------------------

【氏名又は名称】	豊田 善雄
----------	-------

次頁無

特2001-286040

出願人履歴情報

識別番号 [000001007]

1. 変更年月日 1990年 8月30日

[変更理由] 新規登録

住 所 東京都大田区下丸子3丁目30番2号

氏 名 キヤノン株式会社